Die Lichtausbeute organischer Szintillatoren für Elektronen von 1 bis 12 keV

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Georg-August-Universität zu Göttingen

Vorgelegt von

Hans-Henning Kausch-Blecken von Schmeling

aus Hamburg

R. UNIV.
BIBLIOTHEEK
LEIDEN

Göttingen 1960

D 7

Referent: Prof. Dr. A. Flammersfeld
Korreferent: Prof. Dr. R. Hilsch
Tag der mündlichen Prüfung: 22. Juni 1960

Zeitschrift für Physik 160, 520—526 (1960)

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Göttingen

Die Lichtausbeute organischer Szintillatoren für Elektronen von 1 bis 12 keV*

Von

HANS-HENNING KAUSCH-BLECKEN VON SCHMELING

Mit 5 Figuren im Text

(Eingegangen am 29. Juli 1960)

* D 7 (gekürzt). Vorgetragen auf der Physikertagung in Bad Pyrmont am 23. 4. 60.

6211/61

The article deals with a method of measuring the scintillation responce of anthracene and organic plastic scintillators for electrons of 1 to 12 keV. It results in stating that the scintillation response is a linear function of the electron energy down to energies of 4 or 5 keV. Scintillator thickness and surface preparation are of great importance for a linear scintillation response.

1. Einleitung

Die von Elektronen in Anthrazen hervorgerufenen Szintillationen wurden in den letzten Jahren von verschiedenen Autoren[1–4] untersucht. Die Meßreihen enden jedoch an der durch das Photomultiplierrauschen gesetzten Nachweisgrenze für Einzelelektronen von etwa 10 keV. Da es für das Verständnis des Szintillationsvorganges wesentlich ist, den Verlauf der Lichtausbeute im Energieintervall von 0 bis 10 keV zu kennen, wurden die im folgenden beschriebenen Versuche vorgenommen.

2. Methode und Versuchsapparatur

Das Prinzip der Meßmethode besteht darin, eine Gruppe von etwa 1000 Elektronen auf den zu untersuchenden Kristall zu schießen, die Lichtausbeute dieser Elektronengruppe mit einem Multiplier zu bestimmen und die Meßwerte anschließend an der Lichtausbeute eines α-Teilchens bekannter Energie zu orientieren.

Der von einem auf den Kristall treffenden α-Teilchen am Multiplierausgang verursachte Spannungsimpuls hat eine Größe U_α von:

$$U_\alpha = K S_\alpha / C, \tag{1}$$

[1] Taylor, C. J., W. K. Jentschke, M. E. Remley, F. S. Eby and P. C. Kruger: Phys. Rev. **84**, 1034 (1951).

[2] Birks, J. B., and F. D. Brooks: Proc. Phys. Soc. Lond. B **69**, 721 (1956).

[3] Johnston, L. W., R. D. Birkhoff, J. S. Cheka, H. H. Hubbel jr. and B. G. Saunders: Rev. Sci. Instrum. **28**, 765 (1957).

[4] Gubernator, K., P. H. Heckmann u. A. Flammersfeld: Z. Physik **158**, 268 (1960).

wobei S_α die Zahl der in dem Kristall erzeugten Photonen ist, K die im Mittel von jedem Photon am Multiplierausgang verursachte Ladung und C die Kapazität des Multiplierausgangs.

Treffen während einer Zeit T_0 N Elektronen gleichmäßig auf den Kristall, so verursachen sie am Multiplierausgang eine exponentiell ansteigende Spannung, die bei T_0 das Maximum U_e erreicht:

$$U_e = KNS_eR(1 - \exp - T_0/RC)/T_0, \tag{2}$$

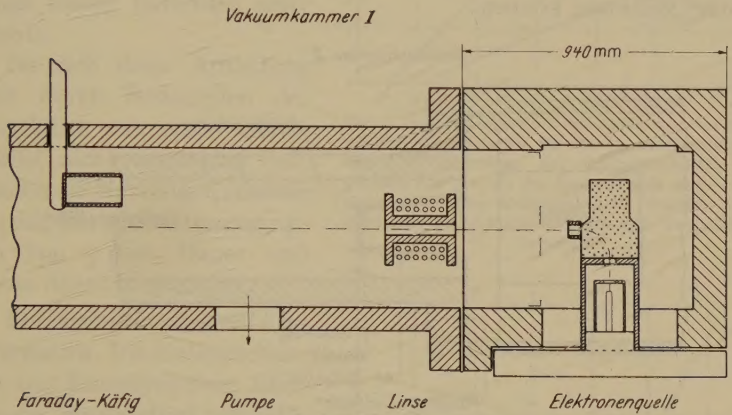

Fig. 1. Anordnung zur Erzeugung eines glühlichtfreien Elektronenstrahls. Die Elektronenquelle liegt auf hohem negativem Potential (die elektrischen Zuführungen sind nicht eingezeichnet), die Beschleunigung der Elektronen findet zwischen Elektronenquelle und geerdeter Anode statt. Die Ablenkung des Elektronenstrahls um 90° wird durch das Feld eines permanenten Magneten bewirkt

wobei K und C wie oben erklärt sind, S_e die Zahl der von einem Elektron erzeugten Photonen und R den Ableitwiderstand des Multiplierausgangs bezeichnet.

Die unbekannte Lichtausbeute S_e läßt sich aus Gl. (1) und (2) bestimmen:

$$S_e = \frac{U_e}{U_\alpha} S_\alpha \cdot \frac{T_0}{RCN(1 - \exp - T_0/RC)}. \tag{3}$$

Die Versuchsapparatur muß gestatten, elektrostatisch beschleunigte Elektronen in Gruppen auf den zu untersuchenden Szintillator zu schießen und das in diesem erregte Licht mit einem Multiplier* zu messen. Die geringe Energie der Elektronen erfordert ein Arbeiten im Vakuum. Fig. 1 zeigt einen Teil der Vakuumkammer mit der Elektronenkanone, einer magnetischen Linse und einem beweglichen Faraday-Käfig.

Durch einen kleinen Permanentmagneten ist erreicht, daß die Elektronen die Kanone unter 90° zu dem Glühlicht der Quelle verlassen, das

* RCA 6199.

im Multiplier einen störenden Untergrund erzeugen würde. Fig. 2 zeigt die Halterung des Szintillators auf einem Lichtleiter. Als α-Quelle dient ein ThB-Präparat. Eine Elektronengruppe wird in der Weise erzeugt, daß der differenzierte Schaltimpuls eines Quecksilberschalters auf das Gitter eines Univibrators gegeben wird, und ein von diesem erzeugter positiver Rechteckimpuls der Dauer T_0 wird an den Wehnelt-Zylinder der Elektronenkanone geführt. Der Wehnelt-Zylinder ist so eingestellt, daß nur während der Dauer des Impulses Elektronen die Kanone verlassen können.

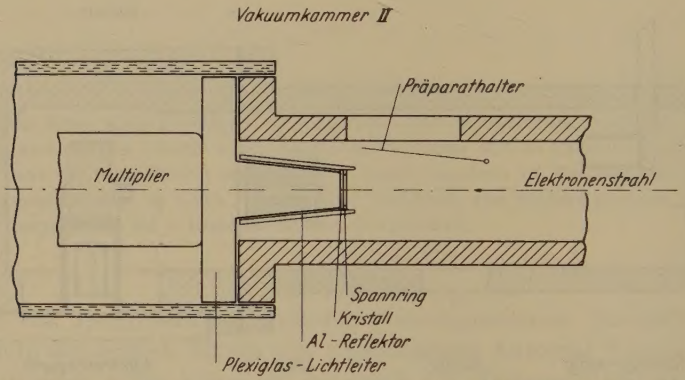

Fig. 2. Anordnung des Szintillators bei der Untersuchung. Der optische Kontakt zwischen Szintillator und Lichtleiter wird durch Paraffinöl hergestellt. Die Geometrie der Anordnung verursacht keine Abhängigkeit der Lichtausbeute von der Dicke des Szintillators

Die Spannungswerte U_α und U_e am Multiplierausgang werden nach Verstärkung mit einem Einkanaldiskriminator bzw. einem Impulsverlängerer und Röhrenvoltmeter bestimmt.

Die Zahl N der Elektronen pro Impuls berechnet sich aus Strommessungen bei einer um den Faktor 10^6 vergrößerten Impulsfolgefrequenz.

3. Ausführung der Versuche

a) Untersuchungen mit periodischen Elektronengruppen. Die ersten Versuche wurden mit periodischen Elektronenimpulsen von 26,6 μsec Dauer und 64 μsec Abstand gemacht, die einen Strom von $6 \cdot 10^{-11}$ Amp darstellten. Es zeigte sich, daß die Lichtausbeute der Szintillatoren während der Bestrahlung rasch abnahm.

Nähere Untersuchungen zeigten, daß eine elektrostatische Aufladung der Szintillatoroberfläche eine Bremsung der nachfolgenden Elektronen bewirkt, die nun mit einer kleineren Energie den Szintillator erreichen. Die Größe der Aufladung richtet sich nach der zugeführten Ladung und der Kapazität der Szintillatoroberfläche gegenüber den geerdeten Wänden der Kammer. Eine Ableitung der Ladung zum geerdeten Rand des

Szintillators findet erst bei einigen kV Potentialdifferenz statt. Bei einem Strom von $6 \cdot 10^{-11}$ Amp, einer Elektronenenergie von 5 keV und einer Kapazität der Szintillatoroberfläche von 0,6 pF vollzieht sich die Aufladung größenordnungs mäßig innerhalb einer Minute.

Da sich diese Aufladung auch durch Bedampfen der Oberfläche mit einer Silberschicht nicht vermeiden ließ, wurden die Messungen schließlich mit Einzelelektronengruppen von 3 μsec Dauer und 15 sec Abstand gemacht.

b) Untersuchungen mit Einzelimpulsen. Die Untersuchungen mit Einzelimpulsen führten zu einwandfrei reproduzierbaren Ergebnissen. Der statistische Fehler des Mittelwerts der Multiplierausgangsimpulse U_e lag zwischen 0,1 und 0,3 %, wenn zu jeder Elektronenenergie 5 bis 10 Elektronengruppen ausgelöst wurden.

Fig. 3 zeigt die Lichtausbeute eines 0,197 mm-Anthrazen-Kristalles und einer 0,14 mm-Plastikschicht*. Während die Elektronenenergie in keV angegeben wird, ist der Ordinatenmaßstab so gewählt, daß $S = 635$ der Lichtausbeute eines Elektrons von 635 keV in dem Anthrazenkristall entspricht. Die Lichtausbeute

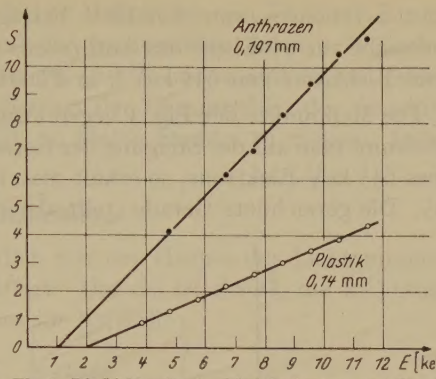

Fig. 3. Die Lichtausbeute S bei Anthrazen- und Plastikszintillatoren, gemessen für einzelne Elektronengruppen von 2000 Elektronen. Der Ordinatenmaßstab ist so gewählt, daß $S = 635$ der Lichtausbeute eines 635 keV-Elektrons in dem Anthrazenkristall entspricht [$S(635)$ wurde aus der Lichtausbeute eines 8,78 MeV-α-Teilchens berechnet [5]]

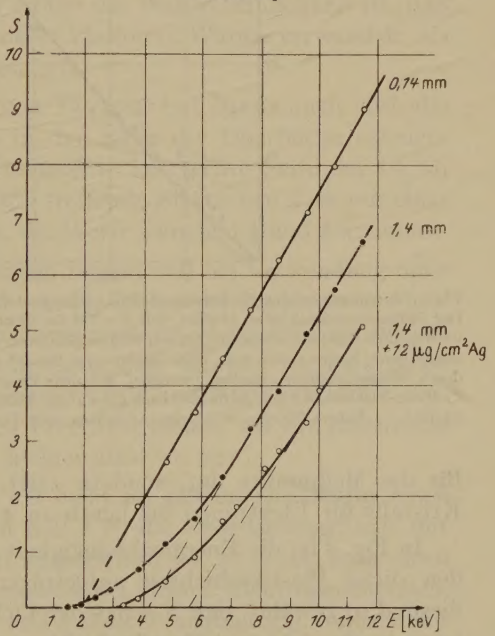

Fig. 4. Die Lichtausbeute S bei verschieden dicken Plastikschichten, gemessen für einzelne Elektronengruppen von 2000 Elektronen. Der Ordinatenmaßstab ist so gewählt, daß $S = 635$ der Lichtausbeute eines 635 keV-Elektrons in der 0,14 mm-Schicht entspricht

* Ne 102 der Nuclear Enterprises, Edinburgh, vorgefertigte Schichten von 1,4 und 0,14 mm.

[5] Heckmann, P. H.: Z. Physik **157**, 139 (1959).

eines α-Teilchens von 8,78 MeV beträgt in Anthrazen bei Einschuß senkrecht zur ab-Ebene des Anthrazens das 2,15fache der Lichtausbeute eines Elektrons von 635 keV[5], in Plastikszintillator das 1,5fache[6].

Die Meßpunkte der Fig. 3 liegen ausgezeichnet auf je einer Geraden. Bestimmt man aus der Steigung der Geraden den Wert der Lichtausbeute eines 635 keV-Elektrons, so erhält man im Rahmen der Meßgenauigkeit 635. Die gezeichnete Gerade stellt also nicht nur eine gute Annäherung

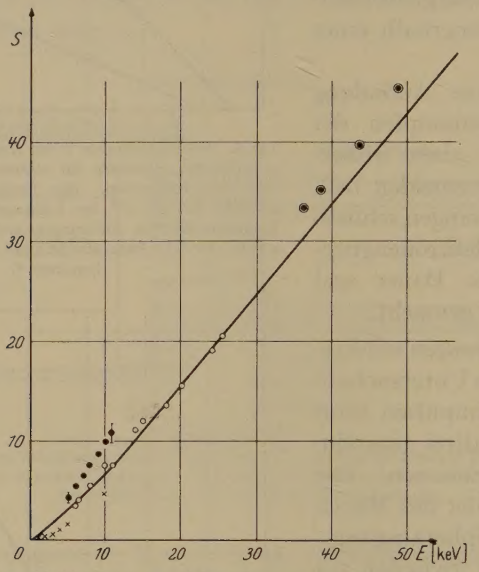

Fig. 5. Zusammenstellung der Ergebnisse der Lichtausbeutemessungen verschiedener Autoren an Anthrazen. Der Ordinatenmaßstab ist so gewählt, daß $S = 635$ der Lichtausbeute eines 635 keV-Elektrons in jedem der untersuchten Kristalle entspricht [bei den dünnen Kristallen wurde $S(635)$ durch Rechnung gewonnen]. Die ausgezogene Kurve wurde nach einer Theorie von BIRKS[7] für Photoelektronen (im Inneren des Kristalls durch Röntgenquanten ausgelöst) berechnet. ● Äußere Elektronen 0,2 mm Anthrazen vorliegende Messung. ○ Photo-Elektronen 3 mm Anthrazen nach BIRKS[2]. ⊙ Äußere Elektronen 0,2 mm Anthrazen nach GUBERNATOR[4]. × Äußere Elektronen 2,5 mm Anthrazen nach TAYLOR[1]. ——— Theoretische Kurve von BIRKS

für die Meßpunkte dar, sondern zeigt, daß die Lichtausbeute dieses Kristalls für Elektronen bis herab zu 4 keV linear verläuft.

In Fig. 4 ist die Energieabhängigkeit der Lichtausbeute für verschieden dicke Plastikschichten aufgetragen. Der Ordinatenmaßstab ist diesmal so gewählt, daß $S = 635$ der Lichtausbeute eines 635 keV-Elektrons in der 0,14 mm-Plastikschicht entspricht.

Die in Fig. 5 ausgezogene Kurve ist von BIRKS theoretisch berechnet worden[7]; sie sollte die Lichtausbeute von im Inneren des Anthrazen durch Röntgenquanten ausgelösten Elektronen (Photoelektronen)

[6] SCHÖNEBERG, R.: Private Mitteilung.

[7] BIRKS, J.B.: Scintillation Counters. London: Pergamon Press 1953.

beschreiben. Eingezeichnet sind ferner Meßpunkte von TAYLOR[1], BIRKS und BROOKS[2], GUBERNATOR[4] und der vorliegenden Arbeit. Während der relative Verlauf der Lichtausbeute (Fig. 3 und 4) mit einem Fehler von höchstens 5% behaftet ist, beträgt der Gesamtfehler der Absolutmessung wegen der Schwierigkeit, so kleine Ströme zu messen, 14%.

4. Diskussion

BIRKS[7] hat sich sehr ausführlich mit der Theorie der Lichtemission in organischen Kristallen beschäftigt. Danach ist dS/dr, die Lichtausbeute pro Weglänge des Elektrons im Kristall:

$$\frac{dS}{dr} = \frac{A\, dE/dr}{1 + kB\, dE/dr}, \tag{4}$$

wobei $A\, dE/dr$ die Zahl der primären Photonen pro Weglänge des Elektrons ist, $B\, dE/dr$ ist die Konzentration schadhafter oder ionisierter Moleküle, und k gibt an, wieviel größer die Wahrscheinlichkeit ist, daß ein beschädigtes Molekül ein primäres Photon in Wärme verwandelt, als daß ein normales Molekül fluoresziert.

Gestützt auf die Messungen von TAYLOR[1] hat BIRKS auch noch die Möglichkeit berücksichtigt, daß in der Nähe der Oberfläche erzeugte primäre Photonen den Kristall verlassen. Die rechte Seite der Gl. (4) wäre für von außen auf den Kristall treffende Elektronen noch mit einer Funktion $\Phi(r)$ zu multiplizieren, die Werte zwischen $\frac{1}{2}$ und 1 annimmt.

Die vorliegenden Untersuchungen zeigen, daß bei Verwendung optimaler Szintillatoren die Lichtausbeute für Elektronen bis herab zu 4 keV eine lineare Funktion der Elektronenenergie ist. Legt man die gleiche Theorie wie BIRKS zugrunde, so bedeutet das, daß hier für Elektronen von mehr als 4 keV $kB\, dE/dr$ klein gegen 1 ist und $\Phi(r)$ praktisch 1, d.h. daß die Reichweite der primären Photonen kleiner als die Reichweite von Elektronen von 4 keV, also kleiner als 0,5 μ ist.

Nimmt man an, daß A und kB nicht im ganzen Szintillator einen konstanten Wert haben, sondern daß z.B. die Oberflächenschicht mit nicht fluoreszierenden Molekülen angereichert ist, so erhält man einen nichtlinearen Verlauf der Lichtausbeute bei kleinen Elektronenenergien, wie ihn die Fig. 4 zeigt. Daß A und kB nicht unabhängig voneinander sind, läßt sich aus der Tatsache schließen, daß die Abszissenabschnitte der extrapolierten Geraden, die ja von kB abhängen, mit wachsender Empfindlichkeit des Szintillators, also größerem A, kleiner werden (Fig. 4). Welcher Art der Zusammenhang von A und kB ist, läßt sich auf Grund der vorliegenden Messungen noch nicht sagen. Ein Ansatz A proportional $1/kB$ befriedigt die Versuchsergebnisse nicht genau.

Ein Vergleich mit den Messungen anderer Autoren an Anthrazen zeigt, daß äußere Elektronen gegenüber Photoelektronen gleicher Energie keine geringere Lichtausbeute ergeben, sondern daß vielmehr die dünnen Kristalle gegenüber den dickeren eine bessere Lichtausbeute liefern. Der Unterschied kann nicht ausschließlich auf Selbstabsorption von Fluoreszenzlicht im dickeren Kristall zurückgeführt werden, da der Anschluß der vorliegenden Messungen an bekannte Untersuchungen durch Vergleich der Lichtausbeute von α-Teilchen in eben diesen dünnen Kristallen hergestellt worden ist.

Herrn Professor Dr. A. Flammersfeld danke ich für die Anregung zu diesen Untersuchungen und wertvolle Diskussionen.

Ferner danke ich der Deutschen Forschungsgemeinschaft, dem Bundesministerium für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft und dem Niedersächsischen Kultusministerium für die zur Verfügung gestellten Mittel.

Druck der Universitätsdruckerei H. Stürtz AG., Würzburg

Lebenslauf

Ich, Hans-Henning Kausch-Blecken von Schmeling, wurde am 1. 12. 1931 in Hamburg als Sohn des Forstmeisters Walther Kausch und seiner Ehefrau Erika geb. Blecken von Schmeling geboren.

In Köslin/Pommern besuchte ich von 1938 bis 1942 die Grundschule und bis 1945 die Oberschule für Jungen. Nach der Vertreibung war ich auf dem Christianeum in Hamburg und von Ostern 1946 bis zur Reifeprüfung am 5. 2. 1951 in dem Niederdeutschen Landerziehungsheim Marienau.

Nach einem halbjährigen Industriepraktikum begann ich in Hamburg Physik zu studieren, machte Ostern 1954 das Vordiplom und ging dann nach Göttingen. Unter Anleitung von Prof. Dr. A. Flammersfeld begann ich 1955 mit einer Diplomarbeit über „Die Energie-Reichweite-Beziehung für Elektronen unter 10 keV". Ich bestand das Diplom in Physik im Juli 1957 mit „Gut". Anschließend arbeitete ich im gleichen Institut über „Die Lichtausbeute organischer Szintillatoren für Elektronen von 1 bis 12 keV". Diese Arbeit wurde im März 1960 abgeschlossen.